



# Simulation expérimentale de l'altération des pierres par cyclage.

Kévin Beck, Muzahim Al-Mukhtar

## ► To cite this version:

Kévin Beck, Muzahim Al-Mukhtar. Simulation expérimentale de l'altération des pierres par cyclage.. 23èmes Rencontres Universitaires de Génie Civil : Risque & Environnement, 2005, Grenoble, France. 8p. hal-00093618

**HAL Id: hal-00093618**

**<https://hal-insu.archives-ouvertes.fr/hal-00093618>**

Submitted on 13 Sep 2006

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Simulation expérimentale de l'altération des pierres par cyclage

Kévin Beck<sup>1,2</sup>, Muzahim Al-Mukhtar<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> CNRS-CRMD, Université d'Orléans

1B rue de la Férollerie, 45071 Orléans cedex 2, France

<sup>2</sup> CNRS-ISTO, Université d'Orléans

1A rue de la Férollerie, 45071 Orléans cedex 2, France

[\\*muzahim@cnrs-orleans.fr](mailto:*muzahim@cnrs-orleans.fr)

---

*RESUME.* Cette communication présente les résultats d'un essai de vieillissement basé sur des cycles d'imbibition-séchage sur une pierre régionale : le tuffeau. Une cinquantaine de cycles qui ont duré trois ans ont été appliqués sur une face d'un échantillon cylindrique. Les mouvements d'eau semblent induire des modifications texturale et minéralogique dues aux phénomènes de dissolution des minéraux, de transport des sels et de recristallisation. Ceci provoque le ralentissement de l'imbibition et témoigne de l'altération de l'échantillon de la pierre testée. De plus, le test d'imbibition permet de montrer la présence de deux zones d'altération distinctes, notamment une patine sur la face cyclée, zone moins poreuse que dans le reste de l'échantillon.

*MOTS-CLÉS :* tuffeau, patine, imbibition.

---

---

**ABSTRACT.** This communication presents the results of a weathering test based on cycles of wetting-drying on a regional stone named tuffeau. About fifty cycles carried out during three years were applied to a side of a cylindrical sample. The movements of water seem to induce pore and mineralogical modifications due to the phenomena of dissolution of minerals, transport of salts and of recrystallization. This caused the decrease of the imbibition kinetics and showed the deterioration of the tested stone sample. Furthermore, the imbibition test allows to show the presence of two different zones of deterioration, notably a patina on the side less porous than in the rest of the sample.

*KEYWORDS :* tuffeau, patina, imbibition.

---

## 1. INTRODUCTION

Cette étude fait partie d'un programme de recherche concernant une approche multi-échelles du comportement des pierres des monuments. Le comportement vis à vis de l'altération subie par les pierres est lié aux phénomènes de transfert hydrique : le changement de la quantité d'eau contenue dans ces matériaux induit des phénomènes de dissolution sélective de phases, de recristallisation et fissuration. La pierre de construction étudiée est le tuffeau qui est largement employé dans les constructions des châteaux du Val de Loire. Sa blancheur, la finesse de son grain et sa relative ductilité de cette pierre a permis la réalisation de façades aux sculptures particulièrement élégantes. Ces façades ont subi ultérieurement des altérations se traduisant par une érosion des sculptures, et parfois même par un arrachement de la zone superficielle des pierres, sur des épaisseurs centimétriques.

L'analyse des différents types d'altérations rencontrées dans les pierres en œuvre montre que le vecteur principal de l'altération est l'eau. En effet, l'eau peut agir de manière directe (gel, dissolution

des minéraux, ...) comme de manière indirecte (transport des sels solubles, favorisation de l'activité biologique, ...). Parmi tous les agents d'altération, les sels solubles tiennent un rôle majeur dans la dégradation des pierres mises en œuvre. La halite NaCl et surtout le gypse  $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  provenant de la dissolution de la calcite et de sa recombinaison avec le soufre dissous, font partie des sels les plus fréquents et les plus destructeurs. Ainsi, de nombreuses études de vieillissement par cyclage ont été réalisées afin d'observer le comportement des pierres en laboratoire face à différents agents d'altération (Goudie, 1999 – Benavente *et al.*, 2001 – Nicholson, 2001).

L'objectif de cette étude consiste à simuler expérimentalement le vieillissement des pierres par cyclage. Des échantillons du tuffeau étudié ont subi des cycles d'imbibition-séchage avec de l'eau pure sans aucun polluant ajouté tel que NaCl ou  $\text{SO}_2$  dissous. A chaque cycle, les propriétés d'imbibition (cinétique d'ascension capillaire et prise de masse d'eau) de la pierre sont mesurées ; et en fin de cyclage, des analyses (composition chimique, porosité, densité, distribution porale, ...) sont réalisées afin d'observer les modifications minéralogiques et texturales apparues dans le matériau.

## 2. CARACTERISATION DU MATERIAU DE L'ETUDE

La caractérisation du tuffeau blanc a été déterminée grâce à différentes techniques complémentaires afin d'évaluer qualitativement et quantitativement les différents éléments : diffraction des rayons-X, analyses thermogravimétriques, spectrométries Raman et Infra-Rouge, et microscopie optique. La caractérisation de l'espace poral a été faite par porosimétrie au mercure. Les caractéristiques physiques du tuffeau étudié sont donnés dans le tableau 1.

Tableau 1 : Principales caractéristiques du tuffeau blanc (St-Cyr-en-Bourg)

Composition minéralogique	Tuffeau blanc	
	Calcite : $\cong 50\%$	Opale CT : $\cong 30\%$
	Quartz : $\cong 10\%$	Argile et Mica : $\cong 10\%$
Densité des grains minéraux ( $\text{g/cm}^3$ )	2,55	
Densité apparente à l'état sec ( $\text{g/cm}^3$ )	1,31	
Porosité	48 %	

La famille des tuffeaux blancs (Dessandier *et al.*, 1997) regroupe des roches sédimentaires d'âge géologique Turonien moyen (Crétacé Supérieur, -90 millions d'années). La pierre étudiée ici a été extraite dans une carrière souterraine à St-Cyr-en-Bourg (Maine-et-Loire, France). Les phases cristallines principales sont la calcite  $\text{CaCO}_3$  et la silice  $\text{SiO}_2$  qui se présente sous deux formes cristallines (le quartz et l'opale Cristobalite-Tridymite). De plus, on constate la présence des minéraux minoritaires comme des micas et des argiles (biotite, muscovite, glauconite qui apparaît verdâtre en microscopie optique). Par ailleurs à cause de la présence de minéraux argileux (glauconite), cette pierre blanche devient gris-verdâtre lorsqu'elle s'humidifie. La taille et la forme des grains constitutifs de la pierre sont assez variées. On trouve de volumineux grains de quartz, d'argile, de calcite sparitique, de paillettes de micas agencés avec plusieurs types de grains très fins comme la calcite micritique, les sphérules d'opale CT (Beck *et al.*, 2003). Le tuffeau a la caractéristique d'être un matériau de construction très léger. En effet, il possède une densité apparente à l'état sec de 1,31 pour

une porosité totale d'environ 48%. L'analyse des résultats de porosimétrie au mercure montre que le tuffeau possède essentiellement une forte mésoporosité (de 0,1 à 10 microns représentant 65 % de l'espace poral investigué), ainsi qu'un domaine macroporeux et une microporosité loin d'être négligeables. La majeure partie des micropores se situe dans la gamme de diamètre de 6 à 20 nm et ceux-ci sont en limite de la porosimétrie au mercure qui ne permet pas de les mettre en évidence. Cette porosité est principalement générée par les particules fines (argile, mica, micrite, ...). Le domaine de porosité qui s'étend sur trois ordres de grandeur (0,01  $\mu\text{m}$  à 20  $\mu\text{m}$ ) est très large, le tuffeau est donc un matériau multi-échelles présentant un spectre de porosité très étalé, avec des domaines macroporeux et microporeux bien représentées (Fig. 1).

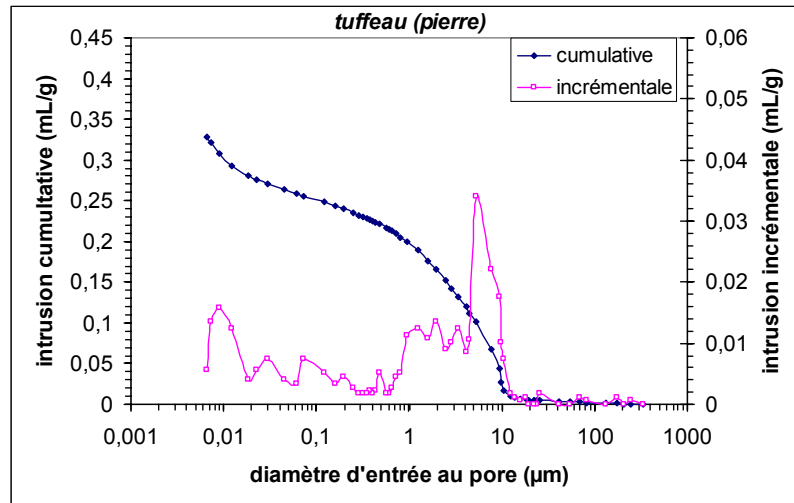


Figure 1 : Courbe de porosimétrie au mercure du tuffeau blanc (St-Cyr-en-Bourg)

### 3. TEST ET METHODE UTILISES

#### 3.1. TEST D'IMBIBITION

Dans cet essai (norme AFNOR B10-613), un échantillon cylindrique préalablement séché est placé dans une cuve hermétique au fond de laquelle le niveau d'eau distillée est maintenu constant pendant toute la durée du test. A intervalles de temps croissants, l'échantillon est pesé et la hauteur de la frange capillaire est mesurée au pied à coulisse.

La propriété d'imbibition par capillarité d'une roche est directement liée à la taille et forme des pores, ainsi que la connectivité du milieu poreux. Le principe est que lorsqu'un solide poreux à l'état sec est mis en contact avec de l'eau, le fluide non mouillant (air) qui remplissait les pores est déplacé par le fluide mouillant (eau) sans qu'une pression extérieure soit appliquée. Ce phénomène d'imbibition capillaire est dû à la mouillabilité préférentielle du solide. Le modèle théorique se base sur l'imbibition par capillarité d'un tube cylindrique vertical de rayon  $r_c$  et de faible hauteur (permettant de négliger la gravité). Le gradient de pression permettant l'écoulement du fluide résulte de la pression capillaire, régie par la loi de Laplace [Eq.1]

$$\Delta P = \frac{2\sigma \cos \theta}{r_c} \quad [\text{Eq.1}]$$

où  $\sigma$  est la tension superficielle du fluide ( $\sigma = 0.072$  N/m) et  $\theta$  l'angle de contact capillaire solide-fluide ( $\theta \approx 0^\circ$  pour l'eau). Le débit du fluide en régime permanent et laminaire dans un tube cylindrique est donné par la loi de Hagen-Poiseuille [Eq.2]

$$Q = \frac{dV}{dt} = \frac{\pi r_c^2 dh}{dt} = \frac{\pi r_c^4 \Delta P}{8 \eta h} \quad [\text{Eq.2}]$$

où  $Q$  est le débit volumique de l'eau,  $h$  la hauteur capillaire,  $\eta$  la viscosité de l'eau ( $\sigma = 0.072$  N/m) et  $\theta$  l'angle de contact capillaire solide-fluide ( $\theta \approx 0^\circ$  pour l'eau).

De ces deux lois, on obtient l'équation de Washburn (Washburn, 1921) qui relie la hauteur  $h$  parcourue par le ménisque durant le temps  $t$  [Eq. 3] et qui devient l'équation 4 mise sous une forme massique,  $dm$  étant la masse de liquide imbibant le tube capillaire de section  $S$ . Les coefficients d'imbibition massique  $A$  et visuel  $B$  correspondent respectivement aux pentes des courbes de prise de masse et d'ascension du front capillaire en fonction de la racine carrée du temps.

$$h = \sqrt{\frac{r_c \sigma}{2 \eta}} \sqrt{t} = B \sqrt{t} \quad [\text{Eq.3}]$$

$$\frac{dm}{S} = A \sqrt{t} \quad [\text{Eq.4}]$$

### 3.2. CYCLAGE D'IMBIBITION-SECHAGE

Un échantillon de pierre (cylindre diamètre 50 mm – hauteur 100 mm taillé dans le sens perpendiculaire au lit de carrière) a subi 50 cycles d'imbibition-séchage. L'imbibition est réalisée avec de l'eau distillée jusqu'à saturation complète à pression atmosphérique et le séchage est réalisé dans une étuve à 50°C par la face d'imbibition, le reste de l'échantillon étant étanchéifié par un manchon hermétique. Le temps de séchage est d'environ 15 jours afin d'arriver à un état quasi-sec de l'échantillon. Afin de pouvoir réaliser une cinquantaine de cycles d'imbibition-séchage, la durée de l'expérience est donc d'environ trois ans. Ce type de cyclage a pour but de simuler expérimentalement le vieillissement de la pierre par les simples conditions naturelles (action de la pluie, du vent, du soleil, ...) sans source de pollution extérieure.

Le suivi des modifications de la cinétique d'imbibition se fait à chaque cycle. Au cycle final, l'échantillon devra ensuite être découpé afin d'analyser les modifications minéralogiques (DRX sur poudre, ATG, ICP, IR/Raman, MEB) et les modifications texturales (porosité à l'eau, pycnométrie Hélium, porosimétrie au mercure, images MEB sur coupe polies) suivant la profondeur à partir de la surface cyclée.

## 4. RESULTATS ET DISCUSSION

Les figures 2.a et 2.b montrent l'allure des courbes d'imbibition pour quatre cycles. A chaque mesure, l'évolution de la hauteur du front d'imbibition et de la prise de masse varie de façon similaire, ce qui témoigne de la pertinence des résultats obtenus. De ces courbes sont déduits les coefficients d'imbibition visuel  $B$  et massique  $A$ , dont l'évolution suivant le nombre de cycles effectué est représenté sur les figures 3.a et 3.b respectivement.

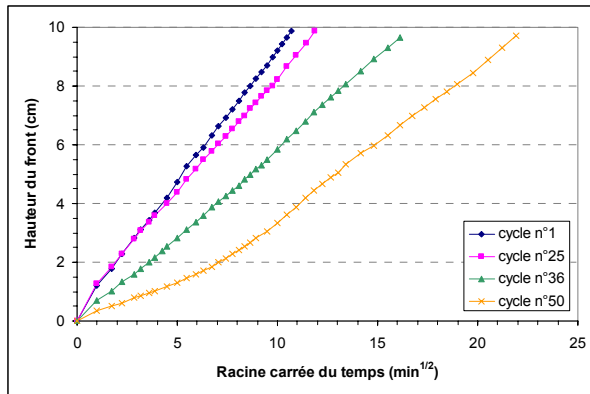


Figure 2.a : Suivi de la hauteur du front d'imbibition

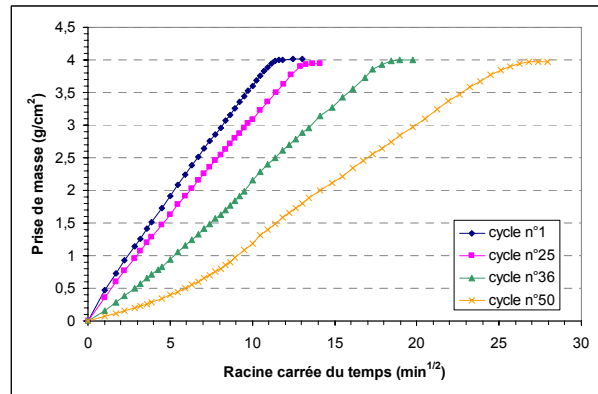


Figure 2.b : Suivi de la prise de masse

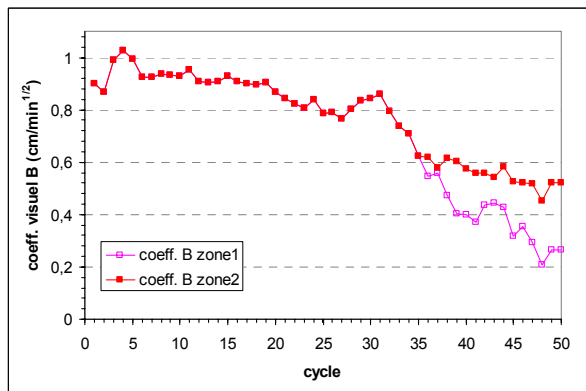


Figure 3.a : Evolution du coeff. B suivant le cyclage

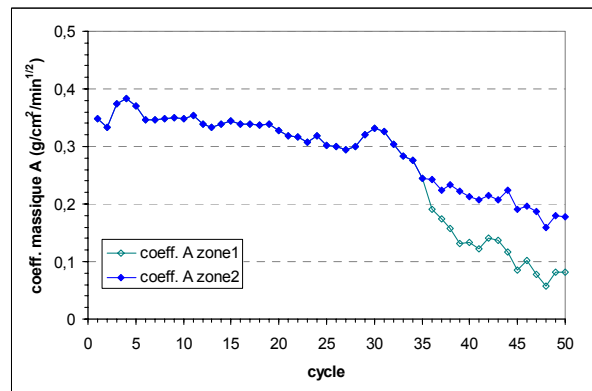


Figure 3.b : Evolution du coeff. A suivant le cyclage

Le cycle n°1 donne les coefficients d'imbibition de référence pour l'échantillon de tuffeau considéré. L'essai de vieillissement est pratiqué sur un matériau sain, tiré de carrière. Les courbes d'imbibition sont des droites bien régulières, ce qui témoigne de l'homogénéité du matériau. Les coefficients d'imbibition du tuffeau sont assez élevés ( $A = 0,35 \text{ g/cm}^2/\text{min}^{1/2}$  et  $B = 0,90 \text{ cm/min}^{1/2}$ ), ce qui fait que l'eau peut facilement pénétrer à l'intérieur de la pierre.

Au cycle n°25, les coefficients d'imbibition sont un peu plus faibles, mais les courbes de hauteur du front et de la prise de masse sont toujours des droites. Il faut attendre le 36<sup>ème</sup> cycle pour commencer à observer une modification de l'allure des courbes d'imbibition. En effet, à partir du cycle n°36, la courbe d'imbibition commence à se décomposer en deux parties distinctes car la cinétique est grandement ralentie sur une distance d'environ 2 cm à partir de la face cyclée (zone 1). Il en résulte une segmentation des courbes d'imbibition qui se compose alors de deux parties, et on peut donc évaluer deux coefficients d'imbibition pour ces deux zones. Dans la partie supérieure à 2 cm (zone 2), les coefficients d'imbibition continuent à diminuer de façon régulière comme depuis le 20<sup>ème</sup> cycle. Alors que dans la zone 1, proche de la face cyclée, les coefficients d'imbibition ont chuté brutalement. L'échantillon n'est donc plus homogène. Et ce phénomène s'est amplifié jusqu'à la fin de l'essai. En effet, les courbes d'imbibition du cycle n°50 montrent clairement la rupture de pente qui s'observe vers les 2 cm de profondeur à partir de la face cyclée. Ceci signifie que l'eau pénètre plus lentement dans la pierre par la face exposée aux cyclages sur une zone d'à peu près 2 cm d'épaisseur. A cause des mouvements d'eau, des modifications capillaires sont apparues sur tout l'échantillon avec une diminution des coefficients d'imbibition de plus de 50%. On peut donc dire que tout l'échantillon a

connu une altération de son réseau poreux. Néanmoins, cette altération est beaucoup plus importante dans la zone proche de la face cyclée. Sur les 50 cycles réalisés, on constate une diminution importante des coefficients d'imbibition mesurés et en fin d'expérimentation, les deux coefficients sont pratiquement divisés par deux. En effet, le temps de mesure pour le test d'imbibition est passé de 2 heures (cycle 1) à un peu plus de 10 heures (cycle 50).

On pourrait expliquer ce ralentissement du transfert capillaire par l'encombrement de l'espace poral du à la dissolution et la re-cristallisation des sels contenus dans la pierre comme la calcite  $\text{CaCO}_3$  par exemple, et à leurs mouvements dans tout le réseau poreux. D'après la figure 2.b, la masse d'eau et par conséquent le volume d'eau capté en fin d'imbibition est globalement le même pendant tout le cyclage. La porosité totale moyenne sur tout l'échantillon n'a donc pas évolué, mais au regard des courbes d'imbibition, l'altération a lieu au niveau de la distribution porale. En effet, d'après l'équation de Washburn [Eq. 3], les coefficients d'imbibition sont proportionnels à la racine carrée du rayon du tube capillaire servant de modèle. Une réduction de cinétique d'ascension capillaire pourrait s'expliquer par une diminution du rayon de pore moyen dans cette zone 1 consécutif à un transport de matière dans l'échantillon de tuffeau. L'eau agirait de manière chimique, en dissolvant le carbonate de calcium du cœur de la pierre qui viendrait se re-cristalliser sur la surface évaporante, et de manière mécanique du aux mouvements d'eau (érosion et transport de minéraux). Pour vérifier ces hypothèses (réduction de la porosité dans la zone 1), une analyse microscopique doit être réalisé afin d'observer les modifications minéralogiques (répartition de la calcite) et surtout les modifications de l'espace poral dans l'échantillon (distribution en taille de pores). Malheureusement, aucune analyse microscopique ne peut être présenté au moment de la rédaction de cette communication. Néanmoins, la simple observation visuelle confirme la modification morphologique de la face cyclée. La figure 4.a montre la face cyclée de l'échantillon avant tout l'essai de vieillissement par cyclage, et la figure 4.b montre cette même face au bout des 50 cycles d'imbibition-séchage. On peut observer un léger changement de couleur, la surface étant devenue légèrement plus brunâtre. On observe aussi que certaines zones de la face cyclée ont un aspect vernissé et paraissent un peu plus compact (la rugosité de surface y paraît plus faible) que d'autres zones. A cause des cycles d'imbibition-séchage, la pierre semble générer une patine sur la face cyclée. La patine est en quelque sorte une sorte d'épiderme qui se formerait à la surface exposée au milieu extérieur, et qui protégerait la pierre en limitant la pénétration de l'eau dans la pierre. Mais la création de cette patine (zone de la pierre plus dense et plus résistante proche de la surface) provoque une inhomogénéité morphologique dans la pierre, ce qui en fait une initiation des futures altérations (Rautureau, 2001).



Figure 4.a :Face cyclée (cycle 1)



Figure 4.b :Face cyclée (cycle 50)

La figure 5 présente les courbes d'imbibition d'un échantillon de tuffeau prélevé sur un pierre mise en œuvre sur le château de Chambord (Brunet-Imbault, 1999). La similitude entre les courbes d'imbibition de cet échantillon provenant d'une pierre altérée en condition naturelle et celles de notre échantillon qui, dans cette étude, a subi un vieillissement artificiel par cyclage d'imbibition-séchage est important. La patine limite fortement l'imbibition par capillarité. Le coefficient de prise de masse est trois fois plus faible dans la zone superficielle. Pour cet échantillon, la zone 2 possède des coefficients d'imbibition proche de ceux d'un tuffeau sain. En condition naturelle, les cycles d'imbibition-séchage se font en imbibition partielle, l'eau de pluie ne pénétrant seulement que sur quelques centimètres. La zone de cœur n'est alors pas sollicitée par la circulation d'eau liquide, elle est donc moins sujette au développement des altérations.

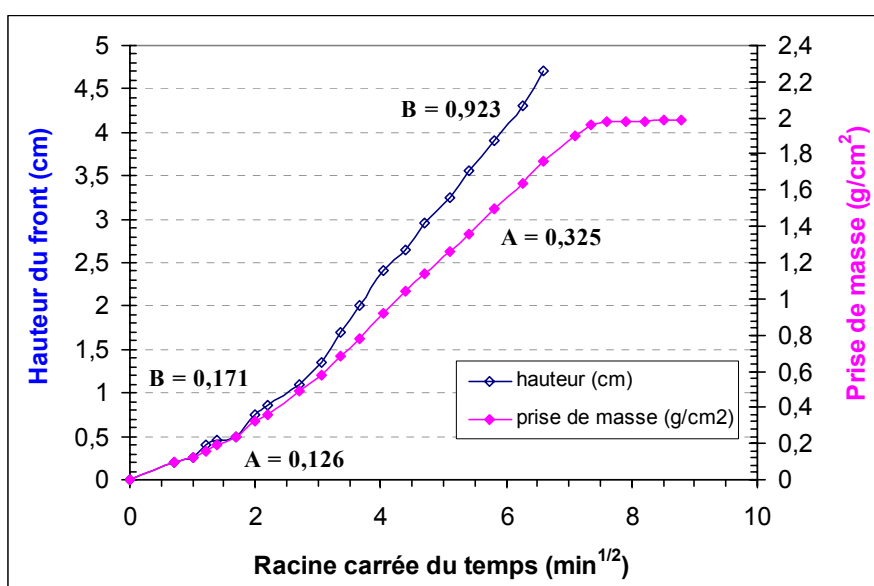


Figure 5 : Courbes d'imbibition pour un tuffeau altéré prélevé in-situ (Brunet-Imbault, 1999)



## 5. CONCLUSION

Les résultats de cette recherche qui s'est déroulée durant trois ans montrent clairement que des mouvements d'eau distillée (sans polluants ajoutés) peuvent provoquer une altération dans une pierre comme le tuffeau. En effet, les cycles imposés dans les tests réalisés (imbibition suivie d'un séchage par une même face) ont induit dans la pierre le début du développement d'une patine sur la face cyclée au bout seulement d'une quarantaine de cycles. Au fur et à mesure que la patine se forme, le temps nécessaire à l'imbibition se ralentit fortement. On pourrait considérer cet "épiderme" comme une protection naturelle de la pierre dans la mesure où il limite l'accessibilité de la structure interne de la pierre aux agents d'altérations. Mais cette patine, provoquant un début d'inhomogénéisation de la pierre, correspond en fait à un premier stade d'altération. Le test d'imbibition qui est un test très simple tant au niveau de la réalisation que du dépouillement pourrait être considéré comme un test témoignant de l'état d'altération dans la pierre. De plus, l'étendue de la zone altérée pourrait être évaluée approximativement à partir des résultats d'imbibition.

Enfin, des analyses (DRX, ATG, ..... ) et des observations (MEB, microscopie optique) au niveau microscopique sont en cours de réalisation afin de déterminer précisément la composition chimique et minéralogique ainsi que les modifications texturales de l'espace poral (porosité et distribution en taille de pores) de la zone altérée.

## 6. BIBLIOGRAPHIE

- Beck K., Al-Mukhtar M., Rozenbaum O., Rautureau M. (2003) « Characterization, water transfer properties and deterioration in tuffeau: building material in the Loire Valley-France » *Building and Environment*, vol. 38, p.1151-1162.
- Benavente D. *et al.* (2001) « Quantification of salt weathering in porous stones using an experimental continuous partial immersion method » *Engineering Geology*, vol. 59, p. 313-325.
- Brunet-Imbault B. (1999) « Etude des patines de pierres calcaires mises en oeuvre en région Centre », Thèse de doctorat, Université d'Orléans.
- Dessandier D., Antonelli F., Rasplus L. (1997) « Relationships between mineralogy and porous medium of the crai tuffeau » *Bulletin de la Soc. Géologique de France*, vol. 186, n°6, p.741-749.
- Goudie A.S. (1999) « Experimental salt weathering of limestones in relation to rock properties » *Earth Surface Processes and Landforms*, vol. 24, p. 715-724.
- Jeannette D. (1992) « Transferts capillaires dans les roches » Cours doctoral européen – Sciences et matériaux du patrimoine culturel, Ravello-Florence.
- Norme AFNOR (1999) « Méthodes d'essai pour pierres naturelles – Détermination du coefficient d'absorption d'eau par capillarité », B10-613.
- Nicholson D.T. (2001) « Pore properties as indicators of breakdown mechanisms in experimentally weathered limestones » *Earth Surface Processes and Landforms*, vol. 26, p. 819-838.
- Rautureau M. (2001) « *Tendre comme la pierre* », ouvrage collectif sous la direction de Michel Rautureau. Conseil régional Centre & Université d'Orléans, disponible en ligne sur <http://www.culture.fr/culture/conservation/fr/biblioth/biblioth.htm>
- Washburn E.W. (1921) « The dynamics of capillary flow », *Physical Review*, vol. 17, n°3, p. 273-283